

明 細 書

嫌気硬化性組成物

<技術分野>

本発明は、従来の嫌気硬化性組成物と同様の保存性を保ちながら、且つ不活性金属を被着体としたときの硬化時間を大幅に向上させることが可能な嫌気硬化性組成物に関する。

<背景技術>

嫌気硬化性組成物は（メタ）アクリル酸エステルモノマーを主成分とする硬化性組成物であり、空気または酸素と接触している間は長期間ゲル化せずに液状状態で安定に保たれ、空気または酸素が遮断もしくは排除されると急速に硬化する性能を有するものであり、このような性質を利用して該組成物はネジ、ボルト等の接着、固定、嵌め合い部品の固着、フランジ面間の接着、シール、鑄造部品に生じる巣孔の充填等に使用されている。

硬化性組成物を被着体に塗布し貼り合わせることにより、空気または酸素が遮断・排除される。嫌気硬化性組成物はこの空気または酸素の遮断・排除により硬化する。このときの硬化時間（セットタイム）は同じ組成の嫌気硬化性組成物であっても被着体の材質により相違する。これは、嫌気硬化性組成物が被着体である金属を酸化させることで自分自身は還元され、この化学反応により硬化するため、被着体の材質によって硬化時間（セットタイム）が異なるというわけである。特に、光沢クロメート、グリーンクロメートなどの酸化防止処理された被着体は被着体表面に活性な金属イオンの存在量が少ないため嫌気硬化性組成物を反応させる能力が低く、硬化時間がかかなり遅くなる。このような被着体を速く接着するためには、被着体表面を少しでも速く酸化させることが重要であると考えられ、組成物中に精製水を加えたり、カルボニル基などを有するモノマーを使用したり、連鎖移動剤などを添加して組成物の反応性そのものを上げたりと、セットタイム

の向上を図った嫌気硬化性組成物が一般に用いられている。これらは、特許文献 1、特許文献 2 等に記載されている。

特許文献 1： 特公平 2－4 4 3 4 5 号公報

特許文献 2： 特公昭 4 8－9 4 6 0 号公報

ところが、上記嫌気硬化性組成物においても被着体材質の違いによるセットタイムの差は大きく、特に保存性に優れ、不活性金属を速硬化させることができる嫌気硬化性組成物は得られていない。

ところで、嫌気硬化メカニズムは基本的に有機過酸化物を開始剤としたラジカル重合であるため、有機過酸化物が金属イオンにより分解され、反応が開始する。そのため嫌気硬化性組成物中に金属イオンを存在させるとゲル化の原因となる。よって、組成物中に銅イオンやバナジウムイオンを存在させることはできず、これらを組成物中に添加しておくことは不可能であった。

上述したとおり、保存安定性を犠牲にしないで不活性金属をも速硬化させることができる嫌気硬化性組成物が望まれていたが、満足するものは得られていなかった。

<発明の開示>

本発明は上述した従来の問題点を克服するものであり、従来の嫌気硬化性組成物と同様の保存性を保ちながら、不活性金属に対する速硬化性を向上した嫌気硬化性組成物を提供することを目的とする。すなわち、本発明は、(a) 分子中に少なくとも 1 つ以上のラジカル重合性官能基を有する化合物、(b) 有機過酸化物、(c) o-ベンゾイックスルフィミド、(d) アルカリ金属以外の金属とエチレンジアミン四酢酸との錯体、または、アルカリ金属以外の金属とジエチレントリアミン五酢酸との錯体、からなる嫌気硬化性組成物を提供する。

<発明を実施するための最良の形態>

本発明に使用される分子中に少なくとも 1 つ以上のラジカル重合性官能基を有する化合物 ((a) 成分) は以下に説明されるものである。まず、ラジカル重合性

官能基とは、アクリロイル基、(メタ)アクリロイル基、ビニル基、プロペニル基などがあげられる。このような官能基を1つ有する化合物は一般的にラジカル重合性モノマーと呼ばれ、例えば、メチル(メタ)アクリレート、エチル(メタ)アクリレート、ブチル(メタ)アクリレート、2-エチルヘキシル(メタ)アクリレート、フェニル(メタ)アクリレート、ベンジル(メタ)アクリレート、2-ヒドロキシエチル(メタ)アクリレート、2-ヒドロキシプロピル(メタ)アクリレート、テトラヒドロフルフリル(メタ)アクリレート、スチレン、 α -メチルスチレン、ジビニルベンゼン等があげられる。なお、(メタ)アクリルとはアクリルとメタクリルを総称したものである。

ラジカル重合性官能基を2つ以上有するものとして、比較的低分子の化合物の分子中にラジカル重合性官能基が2つ以上存在するいわゆるラジカル重合性多官能モノマーと、比較的高分子の化合物の両末端などにラジカル重合性官能基を有する、いわゆるラジカル重合性オリゴマーが挙げられる。ラジカル重合性多官能モノマーとしてはエチレングリコールジアクリレート、ポリエチレングリコールジ(メタ)アクリレート、ネオペンチルグリコールジ(メタ)アクリレート、トリメチロールプロパントリ(メタ)アクリレート、ペンタエリスリトールテトラアクリレート、ジペンタエリスリトールポリ(メタ)アクリレート、テトラメチロールメタンテトラ(メタ)アクリレート等が挙げられる。

ラジカル重合性オリゴマーとしてはビスフェノールなどのグリシジルエーテルのエポキシ基にアクリル酸、メタクリル酸もしくはそれらの多量体を反応させて得られるエポキシ変性(メタ)アクリレート、水酸基含有(メタ)アクリレートと末端イソシアネート基含有化合物とを反応して得られるウレタン結合含有(メタ)アクリレート、ポリエーテル樹脂の末端に(メタ)アクリロイル基を反応させた化合物、ポリエステル末端に(メタ)アクリロイル基を反応させた化合物などが挙げられる。

これらは単独で用いても良いし嫌気硬化性組成物の粘度の調整、あるいはその硬化物の特性を調整する目的で、複数を混合してもどちらでも良いが、通常、単独で所望の性能を出すことが困難であるためラジカル重合性モノマーとラジカル

重合性オリゴマーを混合して使用することが好ましい。

本発明に用いられる有機過酸化物（(b)成分）は従来より嫌気硬化性組成物にて用いられているもので、特に限定されるものではなく、例えば、クメンハイドロパーオキシド、*t*-ブチルハイドロパーオキシド、*p*-メンタンハイドロパーオキシド等のハイドロパーオキシド類、ジクミルパーオキシド、*t*-ブチルクミルパーオキシド、ジ-*t*-ブチルパーオキシド等のジアリルパーオキシド類、メチルエチルケトンパーオキシド、シクロヘキサンパーオキシド、メチルシクロヘキサンパーオキシド等のケトンパーオキシド類、ベンゾイルパーオキシド、ラウロイルパーオキシド、アセチルパーオキシド等のジアシルパーオキシド、*t*-ブチルパーオキシベンゾエート、*t*-ブチルパーオキシアセテート、*t*-ブチルパーオキシマレエート等のパーオキシエステル類等の有機過酸化物等が挙げられる。

これらの有機過酸化物は単独で或いは二種以上の混合物として用いることができる。この（b）成分の配合量は、（a）成分の合計重量100重量部に対して、通常、0.1～5重量部である。0.1重量部よりも少ないと重合反応を生じさせるのに不十分である場合があり、5重量部よりも多いと、嫌気硬化性組成物の安定性が低下する場合がある。

本発明において用いられる（c）成分は*o*-ベンゾイックスルフィミドであり嫌気性組成物には通常使用される成分である。*o*-ベンゾイックスルフィミドはいわゆるサッカリンであり、（c）成分の添加量は（a）成分100重量部に対して、通常、0.1～5重量部配合される。

本発明において用いられる（d）成分はアルカリ金属以外の金属とエチレンジアミン四酢酸（EDTA）またはジエチレントリアミン五酢酸（DTPA）との錯体である。錯体を形成する金属がアルカリ金属の場合は本発明の効果が得られない。実際、エチレンジアミン四酢酸およびジエチレントリアミン五酢酸と錯体を形成する金属は多数存在し、本発明に好適なものと、多量添加しないと効果の現れないものがある。本発明に適する金属として、Mg、Ca、Ti、V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、Al、Agがあげられる。ところで、

エチレンジアミン四酢酸およびジエチレントリアミン五酢酸は金属キレート剤として公知である。嫌気硬化性組成物中に金属イオンが存在すると前述の理由により保存安定性が損なわれる。金属イオンは製造工程中に混入したり、原料自体に存在したりするが、金属キレート剤を添加すると金属イオンを捕獲して、イオンを不活性なまま保持し、保存安定性を向上させるという効果がある。このキレート剤としてはエチレンジアミン四酢酸やトリエチレンテトラミン六酢酸などが使用されるが、金属錯体ではなく単体で使用されるか、ナトリウム塩で使用されるものであった。しかし、錯体でないエチレンジアミン四酢酸、ジエチレントリアミン五酢酸やそれらのナトリウム塩のみを添加しても本発明の作用効果は全く発揮されない。

CuやFeなどの金属イオンは嫌気硬化性組成物から排除されるべきものと考えられ、積極的に添加するという検討はなされていなかった。ただし、2液混合硬化性のSGA接着剤などのように有機過酸化物と金属イオンを別容器で保存する場合は保存安定性には影響がないため金属イオンを積極的に使用することができる。しかし、これらの金属イオンを1液嫌気硬化性組成物に用いると即ゲル化してしまい、実用的な硬化性組成物は得られない。

また、本発明のエチレンジアミン四酢酸の金属錯体、ジエチレントリアミン五酢酸の金属錯体は単一の金属イオンとの錯体でなくともかまわない。また、本発明の金属錯体に用いられるエチレンジアミン四酢酸やジエチレントリアミン五酢酸はナトリウムやカリウムなどとの塩であってもよい。つまり本発明の金属錯体はこのような塩と金属イオンとの錯体（例えば、エチレンジアミン四酢酸2ナトリウム塩とFeとの錯体）であってもよい。むしろ、入手のしやすさの観点から、エチレンジアミン四酢酸やジエチレントリアミン五酢酸はナトリウムやカリウムなどとの塩の方が好ましい。

本組成物に（d）成分を添加すると、グリーンクロメート、有色クロメート、光沢クロメート、黒色クロメート処理などの酸化防止処理された被着体への、硬化時間が早くなり、接着力が若干強くなる。しかも、後述する適量の（d）成分を添加しても保存安定性が悪くなることのない。（d）成分の添加の方法は（d）

成分の溶解性により、水酸基含有(メタ)アクリレートにあらかじめ溶解したり、水にあらかじめ溶解して組成物中に添加することが望ましい。

(d) 成分は(a)成分100重量部に対して0.01~2重量部添加することができる。(d)の配合割合が0.01重量部未満では重合促進剤としての効果が不十分である場合があり、また2重量部を越えると嫌気性組成物の保存安定性が悪くなる場合がある。

本組成物は上記成分以外に重合を促進する成分を少量添加することができる。重合促進剤としてはアミン化合物、メルカプタン化合物、ヒドラジン誘導体を挙げることができる。アミン化合物は1, 2, 3, 4-テトラヒドロキノリン、1, 2, 3, 4-テトラヒドロキナルジン等の複素環第2級アミン、キノリン、メチルキノリン、キナルジン、キノキサリンフェナジン等の複素環第3級アミン、N, N-ジメチルーアニシジン、N, N-ジメチルアニリン等の芳香族第三級アミン類、1, 2, 4-トリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、チアジアゾール、ベンゾトリアゾール、ヒドロキシベンゾトリアゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾキサゾール、1, 2, 3-ベンゾチアジアゾール、3-メルカプトベンゾトリアゾール等のアゾール系化合物等が挙げられる。また、メルカプタン化合物としてはn-ドデシルメルカプタン、エチルメルカプタン、ブチルメルカプタン等の直鎖型メルカプタンが挙げられる。ヒドラジン誘導体としてはエチルカルバゼート、N-アミノルホダニン、アセチルフェニルヒドラジン、p-ニトロフェニルヒドラジン、p-トリルスルホニルヒドラジド等が挙げられるがこれに限定したものではない。

本発明は更に種々の添加剤を使用できる。例えば、保存安定性を得るためには、ベンゾキノン、ヒドロキノン、ヒドロキノンモノメチルエーテル等のラジカル吸収剤などを添加することができる。また、エチレンジアミン4酢酸又はその2-ナトリウム塩、シュウ酸、アセチルアセトン、o-アミノフェノール等の金属キレート化剤等を添加しても良い。更に、その他に嫌気硬化性樹脂の性状や硬化物の性質を調整するために、増粘剤、充填剤、可塑剤、着色剤等を必要に応じて使用することができる。

従来の嫌気硬化性組成物は亜鉛クロメート処理された金属などの不活性金属を接着するのは困難で、接着力が弱く、硬化に長時間を要していた。本発明の組成物は不活性金属が被着体であっても、硬化速度が速く、接着力も向上したものである。しかも、硬化速度が速くなったにもかかわらず保存安定性は従来の嫌気硬化性組成物と同等であり、室温で長期保存可能である。

<実施例>

以下、実施例を参照して本発明をより詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。なお、表中に示された配合量はすべて重量部である。

[実施例 1 ～ 7 および比較例 1、2]

(a) 成分として、2-ヒドロキシエチルメタクリレート (HEMA) 50 重量部および 2, 2-ビス [4- (メタクリロキシエトキシ) フェニル] プロパン 50 重量部、(b) 成分としてクメンハイドロパーオキシドを 1 重量部、(c) 成分として、o-ベンゾイックスルホイミドを 1 重量部、を混合したものをベース樹脂とした。ベース樹脂 100 重量部に (d) 成分として表 1 に示した量のエチレンジアミン四酢酸 2 ナトリウム塩の銅錯体 (EDTA・2Na・Cu) を添加することで嫌気硬化性組成物を調製した。得られた各組成物に対して下記の評価試験を行った。

セットタイム：

上記で得られた各組成物を J I S B 1 1 8 0 の光沢クロメート六角ボルト (M 1 0、P 1. 5×2 0 mm) のねじ部に 1 滴塗布し、J I S B 1 1 8 1 の光沢クロメート六角ナットをボルトの途中まで 0 N・m で締め込み、2 5℃、4 0 % (それぞれ、温度および湿度。以下同様。) の環境で放置し硬化時間を測定した。

接着強度：

接着強度は J I S B 1 1 8 0 の光沢クロメート六角ボルト (M 1 0、P 1. 5×2 0 mm) のねじ部に各組成物を 1 滴塗布し、J I S B 1 1 8 1 の光沢ク

ロメート六角ナットをボルトの途中まで $0\text{ N} \cdot \text{m}$ で締め込み、 25°C 、 40% の環境で 24 時間放置した。その後、トルク測定器を用い、ナットをゆるめる方向に連続で回転させ、ナットがはじめて動き出した点（接着破壊時）のトルクを測定した。

保存安定性：

保存安定性の評価は加熱促進試験として 80°C ゲル化試験を行った。各組成物を 80°C の加熱炉に入れ 1 時間放置する。その後、ゲル化、ゲル状物ができているものは C、増粘しているものは B、ほとんど増粘していないものは A とした。

上記評価試験の結果を表 1 に示した。表 1 からわかるように $\text{EDTA} \cdot 2\text{Na} \cdot \text{Cu}$ を加えることでセットタイムを速くすることができる。

[実施例 8 ～ 14 および比較例 3、4]

(d) 成分として、 $\text{EDTA} \cdot 2\text{Na} \cdot \text{Cu}$ の代わりに、表 2 に示した量のジエチレントリアミン五酢酸ナトリウム塩の鉄錯体 ($\text{DTPA} \cdot \text{Na} \cdot \text{Fe}$) を添加した以外は、実施例 1 と同様に嫌気硬化性組成物を調製した。得られた各組成物に対して、実施例 1 と同様の評価試験を実施した。結果を表 2 に示す。

表 1

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6	実施例 7	比較例 1	比較例 2
ベース樹脂	100	100	100	100	100	100	100	100	100
EDTA・2Na・Cu(II)	0.01	0.03	0.05	0.1	1.0	1.5	2.0	0	3.0
セツトタイム	30	17	15	16	15	15	15	90	15
接着強度	17	20	25	25	25	25	25	10	25
保存安定性	A	A	A	A	A	A	B	A	C

表 2

	実施例 8	実施例 9	実施例 10	実施例 11	実施例 12	実施例 13	実施例 14	比較例 3	比較例 4
ベース樹脂	100	100	100	100	100	100	100	100	100
DTPA・Na・Fe	0.02	0.04	0.07	0.1	1.0	1.5	2.0	0	3.0
セツトタイム	24	17	14	15	14	14	14	90	11
接着強度	20	25	25	25	25	25	25	10	25
保存安定性	A	A	A	A	A	A	B	A	C

[実施例 15～19 および比較例 5]

実施例 15～19、比較例 5、は EDTA 金属錯体の金属イオンの種類を変えておこなった。上記実施例 1 と同様の配合で、EDTA 金属錯体 0.02 重量部の溶解性を一定にするため精製水 0.2 重量部に溶解させた上で添加した。EDTA 金属錯体としては、金属が Mg、Mn、Fe、Ni、Ca のもの、あるいは EDTA 金属錯体を省略し精製水のみ、を使用した。

得られた各組成物に対して実施例 1 と同様の評価試験を行った。但し、セットタイムの評価に関しては、M10 ボルトに各組成物を 1 滴塗布しナットを 0 N・m で組み込み 10 分ごとに測定を行った。評価結果は表 3 に示した。表 3 からわかるように EDTA の金属錯体を加えると加えないものに比べ明らかにセットタイムを向上させている。

表 3

		実施例 15	実施例 16	実施例 17	実施例 18	実施例 19	比較例 5
ベース樹脂	重量部	100	100	100	100	100	100
EDTA 金属錯体中の金属イオン		Mg	Mn	Fe	Ni	Ca	水のみ
セットタイム	分	30	30	40	40	30	70
接着強度	N・m	20	20	17	17	25	10
保存安定性	判定	A	A	A	A	A	A

[比較例 6～13]

比較例 6～9 は実施例 1 の配合を基本として、本発明の (d) 成分の代わりに、他のキレート剤と称される化合物の金属錯体を添加して組成物を調製した。前述のベース樹脂 100 重量部にキレート剤の金属錯体 0.02 重量部を、実施例 15 と同様に溶解性を一定にするため精製水 0.2 重量部に溶解させた上で添加した。用いたキレート剤の金属錯体はニトリロ三酢酸 (NTA) の銅錯体、ヒドロエチルイミノ二酢酸 (HIDA) のバナジウム錯体、トリエチレンテトラミン六

酢酸（T T H A）の銅錯体、プロパンジアミン四酢酸（P D T A）の鉄錯体を使用した。

比較例 1 0 ～ 1 3 は実施例 1 の配合を基本として、本発明の錯体の代わりに、E D T A 単体、E D T A のナトリウム塩、D T P A 単体、D T P A のナトリウム塩をベース樹脂に 0 . 0 2 重量部、さらに酸化銅 0 . 0 1 重量部を添加して組成物を調製した。

上記で得られた各組成物に対して、実施例 1 と同様の評価試験を行った。但し、セットタイムに関しては、実施例 1 5 と同様にして測定を行った。評価結果は表 4 に示した。表 4 からわかるように本発明の（d）成分でないキレート剤では効果はなく、保存安定性が劣るものであることが確認できた。

表 4

		比較例 6	比較例 7	比較例 8	比較例 9	比較例 10	比較例 11	比較例 12	比較例 13
ベース樹脂	重量部	100	100	100	100	100	100	100	100
キレート剤		NTA	HIDA	TTHA	PDTA	EDTA	EDTA	DTPA	DTPA
錯体中の金属イオン		Cu	Va	Cu	Fe	なし	Na	なし	Na
セットタイム	分	10	10	80	90	90	120	80	100
接着強度	N・m	5	5	5	5	10	10	10	10
保存安定性	判定	C	C	A	A	C	A	C	C

本発明を詳細にまた特定の実施態様を参照して説明したが、本発明の精神と範囲を逸脱することなく様々な変更や修正を加えることができることは当業者にとって明らかである。

本出願は、2003 年 7 月 25 日出願の日本特許出願（特願 2003-279578）、2003 年 10 月 28 日出願の日本特許出願（特願 2003-366853）に基づくものであり、その内容はここに参照として取り込まれる。

<産業上の利用可能性>

本発明の嫌気硬化性組成物は被着体が非活性金属の場合でも速硬化が可能であり、ネジ、ボルト等の接着、固定、嵌め合い部品の固着、フランジ面間の接着、シール等に適している。

請 求 の 範 囲

1. (a) 分子中に少なくとも1つ以上のラジカル重合性官能基を有する化合物、(b) 有機過酸化物、(c) o-ベンゾイックスルフィミドおよび(d) アルカリ金属以外の金属とエチレンジアミン四酢酸との錯体、または、アルカリ金属以外の金属とジエチレントリアミン五酢酸との錯体、からなる嫌気硬化性組成物。

2. 前記(a)成分100重量部に対し、(b)成分を0.1～5重量部、(c)成分を0.1～5重量部、(d)成分を0.01～2重量部含有する、請求の範囲第1項記載の嫌気硬化性組成物。

3. アルカリ金属以外の金属がMg、Ca、Ti、V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、Al、Agから選ばれる、請求の範囲第1項または第2項記載の嫌気硬化性組成物。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/010770

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ C08F2/44

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C08F2/00-2/60

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI/L

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2003-519713 A (Henkel Roctite Corp.), 24 June, 2003 (24.06.03), Claims & EP 1254194 A & US 6509394 B1	1-3
A	JP 04-339812 A (Loctite Corp.), 26 November, 1992 (26.11.92), Claims & EP 478220 B & US 5039767 A	1-3
A	JP 02-160881 A (Toa Gosei Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 20 June, 1990 (20.06.90), Claims & DE 3844029 A & US 4898899 A	1-3

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
23 August, 2004 (23.08.04)Date of mailing of the international search report
07 September, 2004 (07.09.04)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))		
Int. Cl ⁷ C08F2/44		
B. 調査を行った分野		
調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))		
Int. Cl ⁷ C08F2/00-2/60		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの		
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)		
WPI/L		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 2003-519713 A(ヘンケル ロックタイト コーポレイション) 2003. 06. 24 特許請求の範囲&EP1254194 A&US 6509394 B1	1-3
A	JP 04-339812 A(ロックタイト コーポレイション)1992. 11. 26 特許請求の範囲&EP 478220 B&US 5039767 A	1-3
A	JP 02-160881 A(東亜合成化学工業株式会社)1990. 06. 20 特許請求の範囲&DE 3844029 A&US 4898899 A	1-3
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「I」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日	23. 08. 2004	国際調査報告の発送日
		07. 9. 2004
国際調査機関の名称及びあて先	特許庁審査官 (権限のある職員)	4 J 3 4 4 6
日本国特許庁 (ISA/JP)	吉澤 英一	
郵便番号100-8915	電話番号 03-3581-1101	内線 3455
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		